

(12) DEMANDE INTERNATIONALE PUBLIÉE EN VERTU DU TRAITÉ DE COOPÉRATION EN MATIÈRE DE BREVETS (PCT)

(19) Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle

Bureau international



(43) Date de la publication internationale 24 juillet 2003 (24.07.2003)

PCT

(10) Numéro de publication internationale WO 03/060218 A1

- (51) Classification internationale des brevets⁷: **D04H 13/00**, B29C 70/16
- (21) Numéro de la demande internationale :

PCT/FR03/00111

(22) Date de dépôt international :

15 janvier 2003 (15.01.2003)

(25) Langue de dépôt :

français

(26) Langue de publication :

français

(30) Données relatives à la priorité : 02/00468 16 janvier 2002 (16.01.2002) FI

- (71) Déposant (pour tous les États désignés sauf US): SAINT-GOBAIN VETROTEX FRANCE S.A. [FR/FR]; 130, avenue des Follaz, F-73000 Chambery (FR).
- (72) Inventeurs; et
- (75) The neurs/Déposants (pour US seulement): DROUX, Michel [FR/FR]; 7, rue de l'Hélia, F-73490 La Ravoire (FR). ROEDERER, François [FR/FR]; 1178, Montée de Chaloup, F-73000 Chambery (FR). VINET, François [FR/FR]; 14 B, Faubourg Reclus, F-73000 Chambery (FR).
- (74) Mandataire: SAINT-GOBAIN RECHERCHE; 39, quai Lucien Lefranc, F-93300 Aubervilliers (FR).

- (81) États désignés (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) États désignés (régional): brevet ARIPO (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), brevet eurasien (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), brevet européen (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SI, SK, TR), brevet OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Publiée:

- avec rapport de recherche internationale
- avant l'expiration du délai prévu pour la modification des revendications, sera republiée si des modifications sont reçues

En ce qui concerne les codes à deux lettres et autres abréviations, se référer aux "Notes explicatives relatives aux codes et abréviations" figurant au début de chaque numéro ordinaire de la Gazette du PCT.

(54) Title: FIBROUS STRUCTURE WHICH IS USED TO PRODUCE COMPOSITE MATERIALS

((54) Titre: STRUCTURE FIBREUSE POUR LA REALISATION DE MATERIAUX COMPOSITES

(57) Abstract: The invention relates to a fibrous structure, particularly of glass, comprising at least one layer of randomly-distributed filament yarns and at least one reinforcing textile layer such as a layer of chopped strands. The different layers in the structure are interconnected using a mechanical means, such as stitching or needle punching, and/or a chemical means such as a binder. The inventive structure can be produced in a continuous or discontinuous manner. Said structure possesses good permeability and good deformability when it is used to produce a composite material.

(57) Abrégé: L'invention concerne une structure fibreuse, notamment en verre, comprenant au moins une couche de fils continus répartis de façon aléatoire et au moins une couche textile de renfort comme une couche de fils coupés, les différentes couches de la structure étant reliées entre elles par un moyen mécanique comme une couture ou un aiguilletage et/ou un moyen chimique comme un liant. Cette structure peut être réalisée en continu ou en discontinu. Elle présente une bonne perméabilité et une bonne déformabilité lorsqu'elle est mise en oeuvre pour la réalisation d'un matériau composite.



10

15

20

25

30

STRUCTURE FIBREUSE POUR LA REALISATION DE MATERIAUX COMPOSITES

L'invention concerne une structure fibreuse comprenant au moins deux couches, plus particulièrement utilisable pour la fabrication de matériaux composites.

La réalisation d'un matériau composite renforcé par des fibres passe par la mise en forme d'une structure fibreuse dans un moule puis par l'injection d'une résine à base de polymère pour imprégner la structure fibreuse. La résine est ensuite solidifiée par réticulation (cas des résines thermodurcissables) ou refroidissement (cas des résines thermoplastiques). La structure fibreuse doit de ce fait présenter un ensemble de propriétés et notamment les suivantes :

- avant imprégnation, elle doit se laisser mettre en forme facilement et donc être aisément déformable notamment à la main,
- elle doit se laisser imprégner le plus facilement possible et doit donc être le plus perméable possible vis-à-vis de la résine d'imprégnation,
- elle doit renforcer le matériau final le plus possible.

L'utilisation de fibres de polypropylène présentant une frisure a été proposée par les EP0745716, EP0659922, EP0395548 pour la constitution de structures fibreuses de renforcement. Cependant, pour nombre d'applications, la fibre de polypropylène ne présente pas de propriétés de renforcement suffisantes et par ailleurs ne se laisse pas facilement mouiller et imprégner par les résines comme les polyesters. L'utilisation d'autres fibres présentant des propriétés mécaniques supérieures et se laissant mieux imprégner est donc souhaitée. Par ailleurs, on souhaite également pouvoir utiliser des fibres sans frisure, compte tenu de ce que la réalisation d'une frisure représente une étape supplémentaire et compte tenu également de ce qu'il n'est pas toujours possible de réaliser une frisure sur une fibre, notamment une fibre de verre.

Le WO96/27039 a proposé une structure de renforcement comprenant une nappe centrale d'un non-tissé ou d'un tricot en fibre de verre. Cependant, la demanderesse a découvert que les tricots et les non-tissés du type mat à fils coupés présentaient une faible perméabilité vis-à-vis de la résine d'imprégnation. En outre, un tricot de verre ne permet pas de réaliser des structures très légères.

10

15

20

25

30

Comme autres document de l'état de la technique, on peut également citer WO9613627 et EP0694643.

Dans le cadre de la présente invention on appelle « mat » un non-tissé lié. Un tel mat a suffisamment de cohésion pour pouvoir être manipulé à la main sans perdre sa structure. Il possède cette cohésion du fait qu'il est lié, généralement par voie chimique (utilisation d'un liant chimique) ou par voie mécanique comme l'aiguilletage où la couture.

La structure fibreuse selon l'invention résout les problèmes susmentionnés. La structure fibreuse selon l'invention comprend au moins une couche de fils continus répartis de façon aléatoire et au moins une couche textile de renfort, les différentes couches de la structure étant reliées entre elles par un moyen mécanique ou un moyen chimique.

La couche de fils continus est constituée de boucles de fils continus venant se superposer partiellement les unes sur les autres. Cette couche est destinée à donner de l'épaisseur et de la déformabilité à l'ensemble de la structure. Elle est déformable et perméable aux résines usuellement utilisées dans la fabrication des matériaux composites. Généralement, les différentes boucles sont issues d'un grand nombre de fils, par exemple 80 à 600 fils. Une telle structure est visible sur la figure 1. Cette structure de la figure 1 est réalisée avec quelques fils continus (5 ou 6 seulement). La flêche sur la gauche indique le sens de défilement de la couche lors de sa fabrication. On a simplement représenté de façon simplifiée sur la figure 1 le début de la constitution d'une couche à fils continus, de façon à illustrer la forme des boucles. En effet, habituellement, la couche, lorsqu'elle est terminée comprend tellement de boucles que l'on ne peut plus voir à travers elle. C'est notamment le cas lorsqu'elle a une masse surfacique de 450 g/m². On entend par « fil » un ensemble de filaments contigus et comprenant plus particulièrement de 10 à 300 filaments. Généralement, cette couche présente une masse surfacique allant de 200 à 700 g/m² et plus particulièrement de 350 à 550 g/m², notamment environ 450 g/m². Avantageusement, la couche de fils continus est en verre, ce qui lui confère d'importantes propriétés renforçantes. Comme couche de fils continus en verre, on peut utiliser le matériau commercialisé par Saint-Gobain Vetrotex sous la marque Unifilo®. Cette couche, dont la fonction essentielle est de donner de l'épaisseur et d'être perméable, a aussi une propriété

10

15

20

25

30

de renfort. A grammage (c'est-à-dire masse surfacique) identique, la structure selon l'invention présente une meilleure perméabilité si on la compare à la même structure pour laquelle la couche à fils continus aurait été remplacée par un mat à fils coupés. Les fils de la couche à fils continus ont généralement une longueur allant de 2 mètres à 4 fois la longueur totale de la structure qui la contient.

La couche textile de renfort comprend des fils et peut avoir toute structure. Elle peut être en non-tissé, en fils coupés, en mat de fils coupés, en mat de fils continus, en tissu, en nappe unidirectionnelle. De préférence, la couche textile de renfort est en fils coupés. Ces fils coupés peuvent par exemple présenter une longueur allant de 1 à 15 cm. Généralement, cette couche de renfort présente une masse surfacique allant de 100 à 600 g/m² et plus particulièrement de 200 à 400 g/m², par exemple environ 300 g/m². La figure 2 représente une couche de fils coupés peu dense vue de dessus. La flêche sur la gauche indique le sens de défilement de la couche.

La structure selon l'invention comprend de préférence une couche centrale de fils continus placée entre deux couches textiles de renfort. Dans ce cas, la structure selon l'invention comprend une deuxième couche textile de renfort, située de l'autre côté de la couche de fils continus par rapport à la première couche textile de renfort. Ces deux couches textiles de renfort peuvent être identiques ou différentes.

Notamment lorsque la structure selon l'invention comprend une couche de fils coupés en tant que couche textile de renfort, ladite structure peut également comprendre une couche d'un voile venant sur la couche de renfort, de l'autre côté de celui de la couche de fils continus par rapport à la couche textile de renfort. Ce voile peut constituer au moins une des deux faces externes de la structure. La structure peut également comprendre deux voiles. Ceci peut notamment être le cas lorsque la structure selon l'invention comprend une couche centrale de fils continus placée entre deux couches textiles de renfort. Dans ce cas, la structure selon l'invention peut comprendre deux couches de voile, chacune constituant une des deux couches externes de la structure. La structure comprend alors deux voiles, chacun constituant les deux faces externes de la structure. Une telle structure est représentée en coupe sur la figure 3 (sur cette figure, les symboles ont la signification suivante :

10

15

20

25

30

fils continus: /////////; fils coupés: XXXXX; voile:_____)

On entend par voile un non-tissé constitué de filaments complètement dispersés. Généralement, cette couche de voile présente une masse surfacique allant de 10 à 60 g/m² et plus particulièrement 20 à 40 g/m², par exemple environ 30 g/m².

Dans le cadre de la présente invention, il est possible d'utiliser un moyen chimique (également appelé liant) pour relier différents points à l'intérieur d'une même couche de la structure et/ou pour relier différents points de différentes couches de la structure. Notamment, la couche de fils continus peut être rendue plus cohérente par l'usage d'un liant, indépendamment de son association avec les autres couches de la structure. Dans ce cas, le liant lie les boucles de la couche de fils continus et fixe la géométrie de la couche de fils continus, ce qui évite le tassement de cette couche pendant l'imprégnation. De la sorte, cela permet d'éviter un effet de déplacement des fils constituant cette couche pendant l'imprégnation ce qui pourrait rendre celle-ci très difficile à un certain moment de l'imprégnation. C'est en ce sens que l'utilisation d'un liant favorise la perméabilité de la structure vis-à-vis de la résine d'imprégnation. Une couche de fils continus ainsi liée peut alors être appelée mat de fils continus.

Le liant peut être mis en oeuvre sous forme liquide (ce qui inclut solution, émulsion, suspension), déposé par un dispositif de type cascade ou pulvérisation, ou sous forme de poudre, déposée par un distributeur de poudre, ou sous forme de film.

De façon générale, le liant peut être mis en oeuvre sous la forme d'une poudre, laquelle peut être pulvérisée sur la couche ou la structure à lier. Lorsque le liant a pour fonction de relier différentes couches de la structure, il peut également être mis en oeuvre sous la forme d'un film placé entre les couches à relier. Un traitement thermique adapté fait ensuite fondre et/ou réticuler un composé du liant de façon à ce qu'il imprègne les différents points qu'il doit relier. Pour le cas ou le liant comprend un polymère thermoplastique, le traitement thermique fait fondre ce polymère de façon à ce qu'il imprègne différents endroits de la structure, le retour à la température ambiante se traduisant par un pontage solide entre les différents points à relier. Pour le cas où le liant comprend un composé (notamment un polymère) thermodurcissable, le traitement thermique

WO 03/060218

5

10

15

20

25

30

fait réticuler (le cas échéant après fusion) ce composé de façon à ce qu'il relie par des ponts solides les différents endroits à relier. Dans les deux cas (liant thermoplastique ou thermodurcissable), le traitement thermique sert également à évaporer l'éventuel solvant utilisé pour son application. Le composé chimique peut être une résine polyester du type thermodurcissable ou thermoplastique. Comme liant réticulable (thermodurcissable), on peut utiliser un polymère acrylique.

Les différentes couches de la structure selon l'invention sont reliées entre elles par des moyens mécaniques et/ou chimiques. Par moyen mécanique on entend couture ou aiguilletage, une couture étant préférée. Par moyens chimiques, on entend un liant comme déjà mentionné. Le liant peut lier les différentes couches textiles deux-à-deux. Le liant peut être mis en oeuvre sous la forme d'une poudre ou sous forme liquide ou sous la forme d'un film interposé entre les différentes couches de la structure. Lorsqu'un voile recouvre une ou les deux couches textiles de renfort, on préfère que ce ou ces voiles soient liés par voie chimique (généralement par une colle) à la structure, notamment si l'on préfère éviter la présence en surface de la structure des marques visibles d'une liaison mécanique pour des raisons esthétiques. Ainsi, les différentes couches non-voiles peuvent être liées par couture ou aiguilletage, alors que le ou les voiles constituant l'une ou les deux faces de la structure peuvent être liées à la structure par un liant.

Si un liant a déjà été utilisé pour donner de la cohésion à la couche de fils continus, on utilise de préférence un liant de même nature pour lier les différentes couches de la structure.

L'ensemble de la structure finale (prête à être utilisée) peut comprendre 0,5 à 10 % en poids de liant (après le traitement thermique), y compris le liant éventuellement utilisé pour donner de la cohésion à la couche de fils continus. La couche de fils continus peut comprendre 1 à 5 % en poids de liant (après le traitement thermique) par rapport à son propre poids.

Si l'on relie différentes couches textiles de la structure par couture ou aiguilletage, on peut de plus également lier par un liant les boucles de la couche de fils continus, aucun liant ne reliant différentes couches textiles entre elles.

Pour le cas ou au moins une couche textile de renfort comprend des fils coupés et que l'on relie les différentes couches textiles de la structure par couture

10

15

. 20

25

30

ou aiguilletage, on peut de plus également lier par un liant les fils coupés de ladite couche textile de renfort, aucun liant ne reliant différentes couches textiles entre elles.

Les fils utilisés pour réaliser les différentes couches de la structure selon l'invention peuvent notamment être en verre ou en carbone ou en aramide. Ainsi, la couche de fils continus peut être en verre; de même, la couche textile de renfort peut être en verre. Notamment, toutes les couches de la structure selon l'invention peuvent être en fils de verre. Généralement, le fil de verre utilisable est ensimé de façon connue de l'homme du métier. Notamment, pour réaliser la couche de fils continus, on peut utiliser un fil de verre ensimé à raison de 0,04 à 3 % en poids et notamment environ 0,2 % en poids.

La structure selon l'invention peut être réalisée en continu ou en discontinu.

Un procédé de réalisation en continu peut faire intervenir les étapes successives suivantes au-dessus d'un tapis défilant :

- réalisation d'une première couche de fils coupés par dépôt de fils coupés sur un tapis défilant, puis

 réalisation de la couche de fils continus sur la première couche de fils coupés, par réalisation de boucles (directement à partir d'une filière ou à partir d'un roving), puis

 réalisation d'une seconde couche de fils coupés par dépôt de fils coupés sur la couche de fils continus.

Le cas échéant, un voile peut être déposé avant la réalisation de la première couche de fils coupés. Le cas échéant, un voile peut être déposé après la réalisation de la seconde couche de fils coupés. La structure peut donc comprendre deux voiles placés chacun sur les faces externes de la structure.

Dans ce procédé continu, l'association des différentes couches de la structure peut être réalisée par au moins un moyen mécanique comme l'aiguilletage ou la couture et/ou au moins un moyen chimique comme un liant. Notamment, on peut relier par aiguilletage ou couture toutes les couches de la structure. Si un ou deux voiles sont utilisées sur l'une ou les deux faces de la structure, on peut relier par aiguilletage ou couture toutes les autres couches (nonvoile) de la structure (notamment la ou les couches de renfort textile et la couche de fils continus) et relier la ou les couches de voile au reste de la structure par

10

15

20

25

30

collage. Dans ce cas, on réalise l'association de la couche de fils continus et de couche(s) textile(s) de renfort au préalable par couture ou aiguilletage et l'on contrecolle ensuite la ou les couche(s) de voile sur les faces externes de la structure, l'ensemble de ces opérations pouvant être réalisé en continu.

Dans un tel procédé en continu, bien que cela ne soit pas exclu, il n'est pas forcément nécessaire d'utiliser un liant pour réaliser un pontage entre les boucles de la couche de fils continus. L'aiguilletage ou la couture donne en effet de la cohésion à l'ensemble de la structure qui peut être manipulée à la main sans risquer qu'elle ne se défasse. Il est cependant possible, en plus de l'aiguilletage ou de la couture, de prévoir de lier en plus les boucles de la couche de fils continus par un liant. Pour ce faire, il suffit d'appliquer le liant sur la couche de fils continus avant la réalisation de la seconde couche de fils coupés. Généralement, si l'on ne cherche qu'à lier les boucles de la couche de fils continus, on applique le liant par pulvérisation. On peut également chercher à utiliser un liant pour lier les différentes couches de la structure en plus de l'aiguilletage ou la couture. Pour ce faire, on peut par exemple pulvériser le liant entre la réalisation des différentes couches. On peut aussi utiliser un liant sous la forme de film, lequel est placé entre les différentes couches à coller de la structure.

On peut également utiliser un liant pour donner la cohésion à l'ensemble de la structure sans réalisation d'aiguilletage ni couture. En effet, le liant fixe d'une part la géométrie de la couche de fils continus ce qui évite le tassement de cette couche pendant l'imprégnation, et également relie deux-à-deux les différentes couches de la structure. Cela permet d'éviter un effet de déplacement de fils pendant l'imprégnation ce qui, d'une part pourrait rendre celle-ci très difficile à un certain moment de l'imprégnation, et d'autre part conférerait de l'inhomogénéité à la pièce finale. C'est en ce sens que l'utilisation d'un liant favorise la perméabilité de la structure vis-à-vis de la résine d'imprégnation. Le liant peut ainsi être pulvérisé sous forme liquide entre les différentes couches ou être appliqué sous la forme d'un film fusible entre les différentes couches. Le traitement thermique peut être réalisé sur l'ensemble de la structure de façon à n'effectuer qu'un seul traitement thermique.

Un procédé de réalisation en discontinu peut faire intervenir la réalisation séparée de la couche de fils continus sous la forme d'un mat. Pour ce faire, on

10

15

.. 20

25

30

réalise tout d'abord les boucles de la couche sur un tapis défilant, puis on fait passer le tapis sous une unité d'application du liant (généralement sous forme liquide), puis on fait passer le tapis dans une étuve de façon à réaliser le traitement thermique, puis on procède à l'enroulement du mat de fils continus ainsi obtenu pour réaliser un rouleau. La couche de fils continus liée (par le liant) peut ainsi être stockée sous la forme d'un rouleau d'un mat de fils continus. Après stockage, le mat de fils continus peut ensuite être inséré dans la structure selon l'invention en reprise à partir d'un rouleau.

Dans le cas d'un procédé de réalisation en discontinu, on peut également réaliser séparément la couche textile de renfort, laquelle est insérée dans la structure selon l'invention en reprise à partir d'un rouleau.

Ainsi, pour un procédé en discontinu, on peut par exemple procéder comme cela est décrit ci-après, pour le cas ou l'on associe à la couche de fils continus deux couches de fils coupés situés de part et d'autre de la couche de fils continus :

- réalisation d'une première couche de fils coupés par dépôt de fils coupés sur un tapis défilant ou déroulement d'un rouleau de mat à fils coupés, puis
- réalisation de la couche de fils continus au-dessus de la première couche de fils coupés par réalisation de boucles (directement à partir d'une filière ou à partir d'un roving) ou par déroulement de la couche de fils continus à partir d'un rouleau de mat, en continu grâce au fait que le tapis continue de défiler, puis
- réalisation d'une seconde couche de fils coupés sur la couche de fils continus par dépôt de fils coupés ou déroulement d'un rouleau de mat à fils coupés, cette étape étant réalisée en continu grâce au fait que le tapis continue de défiler.

Le cas échéant, un voile peut être déposé avant la réalisation de la première couche de fils coupés. Le cas échéant, un voile peut être déposé après la réalisation de la seconde couche de fils coupés. La structure peut donc comprendre deux voiles placés chacun sur les faces externes de la structure.

Dans ce procédé discontinu, l'association des différentes couches de la structure peut être réalisée par au moins un moyen mécanique comme

10

15

. 20

25

30

l'aiguilletage ou la couture et/ou au moins un moyen chimique comme un liant. Notamment, on peut relier par aiguilletage ou couture toutes les couches de la structure. Si un ou deux voiles sont utilisées sur l'une ou les deux faces de la structure, on peut relier par aiguilletage ou couture toutes les autres couches (nonvoile) de la structure (notamment la ou les couches de renfort textile et la couche de fils continus) et relier la ou les couches de voile au reste de la structure par collage. Dans ce cas, on réalise l'association de la couche de fils continus et de couche(s). textile(s) de renfort au préalable par couture ou aiguilletage et l'on contrecolle ensuite la ou les couche(s) de voile sur les faces externes de la structure.

Dans le cadre de ce procédé en discontinu, on peut également utiliser un liant pour donner la cohésion à l'ensemble de la structure sans réalisation d'aiguilletage ni de couture. En effet, le liant relie deux-à-deux les différentes couches de la structure. Cela permet d'éviter un effet de déplacement de fil pendant l'imprégnation ce qui pourrait rendre celle-ci très difficile à un certain moment de l'imprégnation. C'est en ce sens que l'utilisation d'un liant favorise la perméabilité de la structure vis-à-vis de la résine d'imprégnation. Le liant peut ainsi être pulvérisé sous forme liquide entre les différentes couches ou être appliqué sous la forme d'un film fusible entre les différentes couches. Le traitement thermique à effectuer à cause du liant destiné à relier les différentes couches de la structure entre elles peut être réalisé sur l'ensemble de la structure, une fois que les différentes couches textiles ont été superposées.

On peut procéder à la réalisation d'entailles au travers de la couche de fils continus de façon à augmenter sa déformabilité. Ces entailles peuvent avoir n'importe quelle direction par rapport à ladite couche. Ces entailles sont réalisées par des couteaux qui coupent dans toute son épaisseur ou dans une partie seulement de son épaisseur la couche de fils continus, généralement sans enlever de matière. Elles ont une longueur limitée pouvant aller de 0,01 à 0,35 fois la largeur de la couche de fils continus. La couche de fils continus a, ainsi que la structure selon l'invention, une épaisseur, une largeur et une longueur. La largeur de la couche de fils continus est la plus petite dimension de la couche dans le plan des fils continus. On préfère que la direction des entailles soit celle de la largeur. Ainsi, pour le cas ou la couche de fils continus est destinée à être enroulée sous

10

15

20

25

30

forme de mat, les entailles ont la même direction que l'axe des rouleaux de la couche de fils continus. Les entailles facilitent de ce fait l'enroulement de la couche en diminuant sa rigidité dans le sens de l'enroulement. Cependant, on peut également enrouler la couche de fils continus sans entailles, des entailles étant réalisées au moment de son déroulement juste avant la réalisation de la structure selon l'invention. Dans un cas comme dans l'autre, la présence d'entaille facilite l'enroulement de la structure selon l'invention.

Les entailles peuvent par exemple avoir chacune une longueur allant de 0,5 à 30 cm. Les entailles peuvent par exemple être présentes à raison de 30 à 200 entailles par m² de couche de fils continus. On peut par exemple réaliser 100 telles entailles par m² de couche de fils continus. La figure 4 représente vue de dessus une couche de fils continus munie d'entailles parallèles entre elles et ayant la direction de la largeur de la couche. Différentes configurations d'entailles sont représentées sur les figures 4a, 4b, 4c. Les entailles peuvent avoir des longueurs différentes pour une même couche de fils continus, comme le montre la figure 4c. Les flêches sur les figures indiquent le sens de déroulement de la couche.

En jouant sur la quantité de liant et sur le nombre et la longueur des entailles, on peut jouer sur la rigidité de la couche de fils continus. On peut donc rattraper par des entailles la forte rigidité qu'une forte quantité de liant aurait conférée à la couche de fils continus. En augmentant le nombre d'entaille, on peut donc utiliser une forte quantité de liant fixant mieux la géométrie de la couche pendant l'imprégnation. On a en effet constaté que les entailles ne produisaient pas d'inconvénient sur le plan de l'imprégnation par la résine (pas d'effet de bourrage comme précédemment expliqué).

La structure selon l'invention se laisse facilement mettre en place dans un moule d'imprégnation par déformation à la main. La déformation est rendue facile grâce à la déformabilité de la couche de fils continus et grâce au glissement possible des différentes couches les unes par rapport aux autres au sein même de la structure. L'aiguilletage ou la couture reliant les différentes couches de la structure permet en effet un tel glissement. La structure selon l'invention se laisse facilement imprégner puisque le temps de rétention de résine à l'imprégnation est particulièrement faible. L'aptitude de la structure à se laisser imprégner peut s'évaluer à l'aide du test de perméabilité suivant :

10

15

20

25

30



On réalise une pièce plane par moulage en transfert de résine (« RTM » en anglais) dans un moule équipé de capteurs de pression. Grâce à ces capteurs de pression situés à intervalles réguliers, on obtient des graphiques de la pression en fonction du temps. Ensuite, on applique la loi de Darcy pour obtenir la perméabilité k en m², laquelle vérifie l'équation (loi de Darcy):

 $Q/s = k.\Delta P/\eta. \Delta x$

dans laquelle

Q représente le débit,

S représente la section de l'empreinte du moule,

η représente la viscosité dynamique de la résine d'imprégnation,

ΔP représente la différence de pression entre deux capteurs,

Δx représente la distance entre deux capteurs.

Les petites valeurs de k indiquent une perméabilité faible (ou une résistance élevée à l'écoulement), les grandes valeurs indiquent une perméabilité élevée (ou une résistance faible à l'écoulement).

L'invention concerne également les matériaux composites pouvant être obtenus par imprégnation de la structure selon l'invention. Cette structure peut notamment être imprégnée par les procédés dits de moulage par transfert de résine ou RTM (de l'anglais « resin transfer molding »), ou d'infusion (« scrimp » en anglais). Ces procédés sont bien connus de l'homme du métier.

Pour imprégner la structure selon l'invention, on utilise généralement une résine du type suivant : polyester insaturé, phénolique, acrylique, époxy, vinylester.

La figure 5 représente une photo d'une couche de fils continus de masse surfacique d'environ 450 g/m². La figure 6 représente une photo d'une couche de fils coupés de masse surfacique d'environ 450 g/m².

La figure 7 représente d'une part l'appareillage utilisable pour le test de perméabilité et, en dessous de lui, les courbes que l'on peut obtenir en suivant l'évolution de la pression P au cours du temps T. L'appareillage comprend un moule 1 adapté à l'imprégnation d'une structure plane par injection d'une résine



aménée par une canalisation 2 à une tête d'injection 3. Les capteurs de pression 4 mesurent les pressions dans le moule.

10

15

20

25

30



REVENDICATIONS

- Structure fibreuse comprenant au moins une couche de fils continus répartis de façon aléatoire et au moins une couche textile de renfort, les différentes couches de ladite structure étant reliées entre elles par un moyen mécanique ou chimique.
- Structure selon la revendication précédente caractérisée en ce que la couche de fils continus a une masse surfacique allant de 200 à 700 g/m².
- Structure selon la revendication précédente caractérisée en ce que la couche de fils continus a une masse surfacique allant de 350 à 550 g/m².
 - 4. Structure selon l'une des revendications précédentes, caractérisée en ce que la couche textile de renfort est en fils coupés.
 - 5. Structure selon la revendication précédente caractérisée en ce que la couche textile de renfort a une masse surfacique allant de 100 à 600 g/m².
 - 6. Structure selon la revendication précédente caractérisée en ce que la couche textile de renfort a une masse surfacique allant de 200 à 400 $\rm g/m^2$.
 - 7. Structure selon l'une des revendications 4 à 6 caractérisée en ce que les fils coupés ont une longueur allant de 1 à 15 cm.
 - 8. Structure selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'elle comprend une deuxième couche textile de renfort, située de l'autre côté de la couche de fils continus par rapport à la première couche textile de renfort.
 - 9. Structure selon la revendication précédente caractérisée en ce qu'elle comprend au moins un voile constituant au moins une des deux faces externes de la structure.
 - 10. Structure selon la revendication précédente caractérisée en ce que au moins un voile a une masse surfacique allant de 10 à 60 g/m².
 - 11. Structure selon la revendication précédente caractérisée en ce que au moins un voile a une masse surfacique allant de 20 à 40 g/m².

WO 03/060218

5

10

15

. . 20

25

30



- 12. Structure selon l'une des revendications précédentes caractérisé en ce que les différentes couches textiles non-voile sont liées par couture.
- 13. Structure selon l'une des revendications 1 à 11 caractérisé en ce que les différentes couches textiles non-voile sont liées par aiguilletage.
- 14. Structure selon l'une des revendications précédentes caractérisé en ce que les boucles de la couche de fils continus sont liées par un liant.
- 15. Structure selon l'une des revendications 1 à 14 caractérisé en ce que les différentes couches textiles sont liées deux-à-deux par un liant.
- 16. Structure selon l'une des revendications précédentes caractérisé en ce que la couche de fils continus comprend des entailles augmentant sa déformabilité.
- 17. Structure selon la revendication précédente caractérisée en ce que les entailles ont une longueur allant de 0,01 à 0,35 fois la largeur de la couche de fils continus.
- 18. Structure selon l'une des deux revendications précédentes caractérisée en ce que la direction des entailles est celle de la largeur de la structure.
- 19. Structure selon l'une des revendications 16 à 18 caractérisé en ce que les entailles ont une longueur allant de 0,5 à 30 cm.
- 20. Structure selon l'une des revendications 16 à 19 caractérisé en ce que les entailles sont présentes à raison de 30 à 200 entailles par m² de couche de fils continus.
- 21. Structure selon l'une des revendications précédentes caractérisé en ce que la couche de fils continus est en verre.
- 22. Structure selon l'une des revendications précédentes caractérisé en ce que la couche textile de renfort est en verre.
- 23. Matériau composite comprenant une structure de l'une des revendications précédentes.
- 24. Procédé de préparation en continu d'une structure fibreuse comprenant au moins une couche de fils continus répartis de façon aléatoire et deux couches textiles de renfort, la couche de fils continus étant placée entre les deux couches textiles de renfort, comprenant les étapes suivantes :
- réalisation d'une première couche de fils coupés par dépôt de fils coupés sur un tapis défilant, puis

étapes suivantes :

5

10

15

20

25



- réalisation de la couche de fils continus sur la première couche de fils coupés, par réalisation de boucles, puis
- réalisation d'une seconde couche de fils coupés par dépôt de fils coupés sur la couche de fils continus,
 les différentes couches textiles de ladite structure étant ensuite reliées
- 25. Procédé de préparation en discontinu d'une structure fibreuse comprenant au moins une couche de fils continus répartis de façon aléatoire et deux couches textiles de renfort, la couche de fils continus étant placée entre les deux couches textiles de renfort, comprenant les

entre elles par au moins un liant et/ou au moins un moyen mécanique.

- réalisation d'une première couche de fils coupés par dépôt de fils coupés sur un tapis défilant ou déroulement d'un rouleau de mat à fils coupés, puis
- réalisation de la couche de fils continus au-dessus de la première couche de fils coupés par réalisation de boucles ou par déroulement de la couche de fils continus sous la forme d'un mat à partir d'un rouleau, en continu grâce au fait que le tapis continue de défiler, puis
- réalisation d'une seconde couche de fils coupés sur la couche de fils continus par dépôt de fils coupés ou déroulement d'un rouleau de mat à fils coupés, cette étape étant réalisée en continu grâce au fait que le tapis continue de défiler.
 - les différentes couches textiles de ladite structure étant ensuite reliées entre elles par au moins un liant et/ou au moins un moyen mécanique.
- 26. Procédé selon la revendication précédente caractérisé en ce que la couche de fils continus est déroulée sous la forme d'un mat à partir d'un rouleau et en ce qu'elle comprend des entailles.

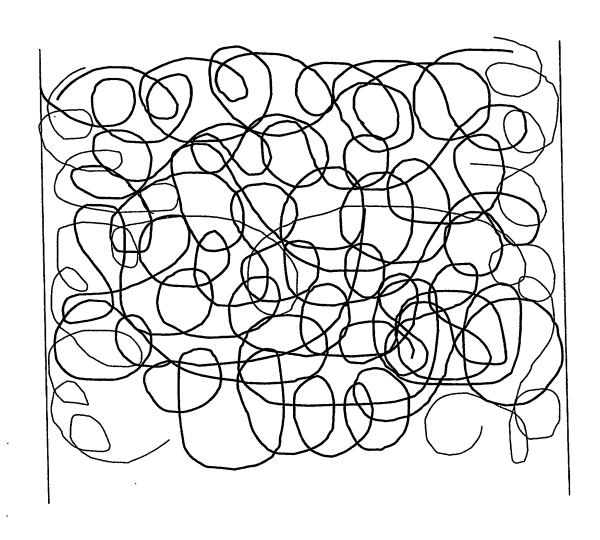


FIG 1



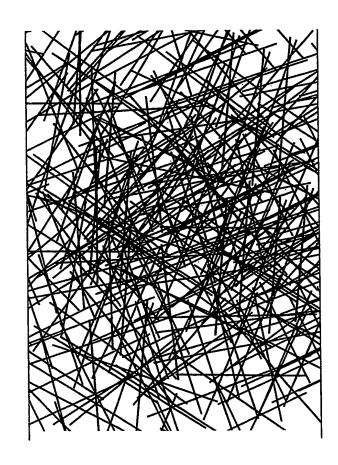


FIG 2



FIG3

1			
			4
		·	
	<u></u>		
	4		
ı			

FIG 4a



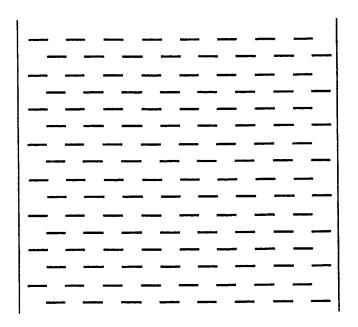


FIG 4b

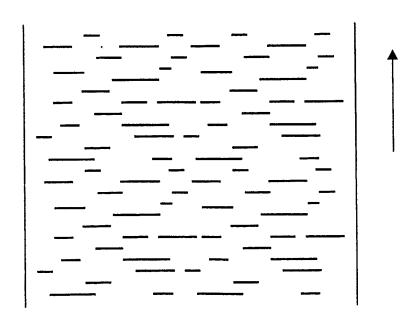
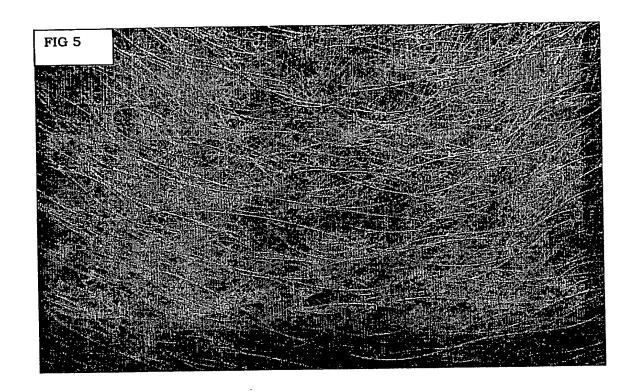
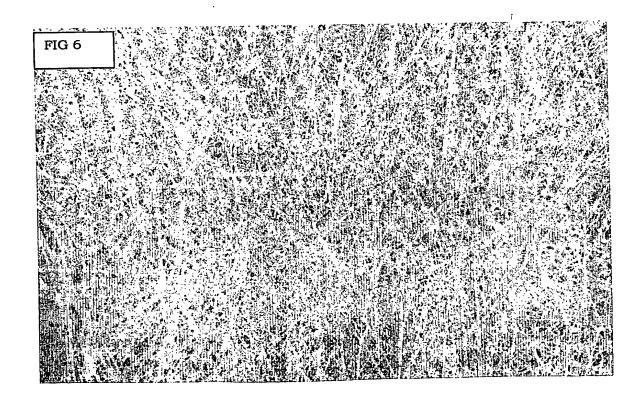
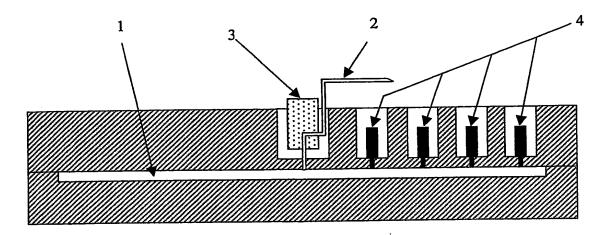


FIG 4c









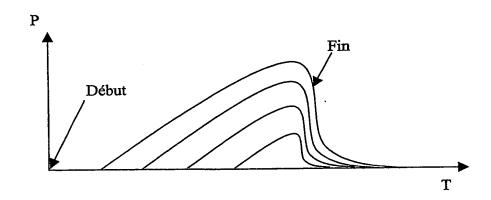


FIG 7

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Application No Internat 03/00111

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 D04H13/00 B29C70/16

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 D04H B29C

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUM	ENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT				
Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of th	e relevant passages	Relevant to claim No.		
X A	DE 196 08 378 A (ASGLAWO GMBH DAEMME) 11 September 1997 (199 the whole document	STOFFE ZUM 7-09-11)	1,4,8, 13,22,23 24,25		
A	EP 0 694 643 A (CHOMARAT & CIE 31 January 1996 (1996-01-31) cited in the application the whole document)	1,24,25		
A	WO 96 27039 A (CLAEYS ETIENNE SA NV (BE)) 6 September 1996 (cited in the application abstract	;SYNCOGLAS 1996-09-06)	1,24,25		
Α	US 5 578 373 A (KOBAYASHI SEIZ 26 November 1996 (1996-11-26) column 2, line 46-52	-/	1,16,24		
X Fur	rther documents are listed in the continuation of box C.	X Patent family members are listed	i in annex.		
"A" docum cons "E" earlier filing "L" docum which citati "O" docum othe "P" docum	categories of cited documents: ment defining the general state of the art which is not sidered to be of particular relevance or document but published on or after the international date of the international date of the stablish the publication date of another ion or other special reason (as specified) ment referring to an oral disclosure, use, exhibition or or means ment published prior to the international filing date but than the priority date claimed	"T" later document published after the into or priority date and not in conflict with cited to understand the principle or the invention "X" document of particular relevance; the cannot be considered novel or cannot involve an inventive step when the discussion of particular relevance; the cannot be considered to involve an indocument is combined with one or ments, such combination being obvious the art. "&" document member of the same paten	claimed invention to be considered to ocument is taken alone claimed invention ocument is taken alone claimed invention oventive step when the ore other such docu- ous to a person skilled		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the International se	Date of mailing of the International search report		
	25 June 2003				
Name and	d mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,	Authorized officer V Beunden-Hopkins	s . S		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

PCT Application No

		PC1) 03/00111		
C.(Continua	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.		
A	EP 0 659 922 A (CHOMARAT & CIE) 28 June 1995 (1995-06-28) cited in the application example 1	1,9		
A	DATABASE WPI Section Ch, Week 199711 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class F04, AN 1997-115837 XP002214225 & JP 09 003761 A (NIPPON PETROCHEMICALS CO LTD), 7 January 1997 (1997-01-07) abstract	16		
Α	EP 0 395 548 A (CHOMARAT & CIE) 31 October 1990 (1990-10-31) cited in the application example 1	1		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

on patent family members

PCT 03/00111

Patent document ted in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
E 19608378	A	11-09-1997	DE	19608378 A1	11-09-1997
 P 0694643	Α	31-01-1996	FR	2722802 A1	26-01-1996
.1 0054010	• •	• • • • • • • • • • • • • • • • • • • •	AT	164642 T	15-04-1998
			CZ	9501599 A3	14-02-1996
			DE	69501927 D1	07-05-1998
			DE	69501927 T2	30-07-1998
			DK	694643 T3	22-02-1999
			EP	0694643 A1	31-01-1996
			ES	2115334 T3	16-06-1998
			FI	953504 A	22-01-1996
			NO	952896 A	22-01-1996
			PL	309719 A1	22-01-1996
			SI	694643 T1	31-08-1998
				88395 A3	07-02-1996
			SK 		
WO 9627039	Α	06-09-1996	NL	9500414 A	01-10-1996
NO 3027033	••	••••	AT	217917 T	15-06-2002
			AU	4872096 A	18-09-1996
			WO	9627039 A1	06-09-1996
			CA	2214284 A1	06-09-1996
			CZ	9702742 A3	14-01-1998
			DE	69621350 D1	27-06-2002
			DE	69621350 T2	19-12-2002
			EP	0873441 A1	28-10-1998
			ES	2173269 T3	16-10-2002
				973572 A	30-10-1997
			FI	11500791 T	19-01-1999
			JP 		
US 5578373	Α	26-11-1996	JP	2938613 B2	23-08-1999
03 3370373	•	20 22 200	JΡ	5214657 A	24-08-1993
			CA	2054427 A1	02-05-1992
			EP	0483780 A2	06-05-1992
		28-06-1995	FR	2714397 A1	30-06-1995
EP 0659922	Α	20-00-1333	AT	136596 T	15-04-1996
			CZ	9403258 A3	12-07-1995
			DE	69400134 D1	15-05-1996
			DE	69400134 T2	29-08-1996
				659922 T3	03-06-1996
			DK	0659922 A1	28-06-1995
			EP Es	2085819 T3	01-06-1996
JP 9003761	Α	07-01-1997	NONE		
EP 0395548	Α	31-10-1990	FR	2646442 A1	02-11-1990
L1 0393370		J. 10 1000	DE	69003436 D1	28-10-1993
			DE	69003436 T2	20-01-1994
			EΡ	0395548 A1	31-10-1990

RAPPORT DE RECHEBCHE INTERNATIONALE

PCT/03/00111

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE CIB 7 D04H13/00 B29C70/16

Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE

Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement)

CIB 7 DO4H B29C

Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche

Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si réalisable, termes de recherche utilisés)
EPO-Internal, WPI Data

Catégorie °	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indica	no. des revendications visées	
X A	DE 196 08 378 A (ASGLAWO GMBH S DAEMME) 11 septembre 1997 (1997 le document en entier	1,4,8, 13,22,23 24,25	
A	EP 0 694 643 A (CHOMARAT & CIE) 31 janvier 1996 (1996-01-31) cité dans la demande le document en entier	1,24,25	
A	WO 96 27039 A (CLAEYS ETIENNE ; SA NV (BE)) 6 septembre 1996 (1 cité dans la demande abrégé	SYNCOGLAS 996-09-06)	1,24,25
A	US 5 578 373 A (KOBAYASHI SEIZO 26 novembre 1996 (1996-11-26) colonne 2, ligne 46-52		1,16,24
		-/	
X Voi	la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents	X Les documents de famille	es de brevets sont indiqués en annexe
A docum consi *E* docum ou ap	es spéciales de documents cités: ent définissant l'état général de la technique, non déré comme particulièrement pertinent ent antérieur, mais publié à la date de dépôt international rès cette date ent pouvant jeter un doute sur une revendication de	date de priorité et n'appartentechnique pertinent, mais cité ou la théorie constituant la ba "X" document particulièrement per être considérée comme nouvinventive par rapport au document particulière par rapport au docu	e pour comprendre le principe ase de l'invention ritinent; l'inven tion revendiquée ne peul relle ou comme impliquant une activité irment considéré isolément
priori autre *O* docum une e	té ou cité pour déterminer la date de publication d'une citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée) nent se référant à une divulgation orale, à un usage, à exposition ou tous autres moyens nent publié avant la date de dépôt international, mais interurement à la date de priorité revendiquée	"Y" document particulièrement per ne peut être considérée com- lorgue le document est asso	rtinent; l'inven tion revendiquée me impliquant une activité inventive ocié à un ou plusieurs autres cette combinaison étant évidente

03/07/2003

V Beurden-Hopkins, S

Fonctionnaire autorisé

25 juin 2003

Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale

NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016

Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2

RAPPORT DE RECHEBCHE INTERNATIONALE

PCT 03/00111

		03/00111
C.(suite) D	OCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS	
Catégorie °	Identification des documents cités, avec,le cas échéant, l'Indicationdes passages per	tinents no. des revendications visées
A	EP 0 659 922 A (CHOMARAT & CIE) 28 juin 1995 (1995-06-28) cité dans la demande exemple 1	1,9
A	DATABASE WPI Section Ch, Week 199711 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class F04, AN 1997-115837 XP002214225 & JP 09 003761 A (NIPPON PETROCHEMICALS CO LTD), 7 janvier 1997 (1997-01-07) abrégé	16
A	EP 0 395 548 A (CHOMARAT & CIE) 31 octobre 1990 (1990-10-31) cité dans la demande exemple 1	

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renselgnements relatifs aux me

de familles de brevets

Deman pernationale No PCT 03/00111

ocument brevet cité rapport de recherche		Date de publication		lembre(s) de la nille de brevet(s)	Date de publication
DE 19608378	A	11-09-1997	DE	19608378 A1	11-09-1997
EP 0694643		31-01-1996	FR	2722802 A1	26-01-1996
			AT	164642 T	15-04-1998
			CZ	9501599 A3	14-02-1996
			DE	69501927 D1	07-05-1998
			DE	69501927 T2	30-07-1998
			DK	694643 T3	22-02-1999
			EP	0694643 A1	31-01-1996
			ES	2115334 T3	16-06-1998
			FI	953504 A	22-01-1996
			NO	952896 A	22-01-1996
			PL	309719 A1	22-01-1996
			SI	694643 T1	31-08-1998
			SK	88395 A3	07-02-1996
		06-09-1996	NL	9500414 A	01-10-1996
WO 9627039	^	00-09-1990	AT	217917 T	15-06-2002
			AU	4872096 A	18-09-1996
			WO	9627039 A1	06-09-1996
			CA	2214284 A1	06-09-1996
			CZ	9702742 A3	14-01-1998
			DE	69621350 D1	27-06-2002
			DE	69621350 T2	19-12-2002
			EP	0873441 A1	28-10-1998
			ES	2173269 T3	16-10-2002
			FI	973572 A	30-10-1997
			JP	11500791 T	19-01-1999
		26-11-1996	 JP	2938613 B2	23-08-1999
US 5578373	Α	20-11-1990	JP	5214657 A	24-08-1993
			CA	2054427 A1	02-05-1992
			EP	0483780 A2	06-05-1992
		00 06 1005	 FR	2714397 A1	30-06-1995
EP 0659922	Α	28-06-1995	AT	136596 T	15-04-1996
			CZ	9403258 A3	12-07-1995
				69400134 D1	15-05-1996
			DE	69400134 D1 69400134 T2	29-08-1996
			DE	659922 T3	03-06-1996
			DK	0659922 A1	28-06-1995
			EP ES	2085819 T3	01-06-1996
JP 9003761	Α	07-01-1997	AUCUN		
EP 0395548	A	31-10-1990	FR	2646442 A1	02-11-1990
LI 0333340	^	31 10 1330	DE	69003436 D1	28-10-1993
			DE	69003436 T2	20-01-1994
			EP	0395548 A1	31-10-1990

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

BLACK BORDERS

IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES

FADED TEXT OR DRAWING

BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING

SKEWED/SLANTED IMAGES

COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS

GRAY SCALE DOCUMENTS

LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT

REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.